

## (12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19)世界知的所有権機関  
国際事務局



(43)国際公開日  
2004年10月28日 (28.10.2004)

PCT

(10)国際公開番号  
WO 2004/092292 A1

- (51)国際特許分類: C09J 5/00, B09B 5/00, 3/00
- (21)国際出願番号: PCT/JP2004/005291
- (22)国際出願日: 2004年4月14日 (14.04.2004)
- (25)国際出願の言語: 日本語
- (26)国際公開の言語: 日本語
- (30)優先権データ:  
特願2003-109355 2003年4月14日 (14.04.2003) JP  
特願2003-109356 2003年4月14日 (14.04.2003) JP  
特願2003-276832 2003年7月18日 (18.07.2003) JP  
特願2003-276833 2003年7月18日 (18.07.2003) JP
- (71)出願人(米国を除く全ての指定国について): 積水化学工業株式会社 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5308565 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号 Osaka (JP).
- (72)発明者; および  
(75)発明者/出願人(米国についてのみ): 多田俊生 (TADA, Toshio) [JP/JP]; 〒6188589 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 西村洋平 (NISHIMURA, Yohei) [JP/JP]; 〒6188589 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 豊嶋克典 (TOYOSHIMA, Katsunori) [JP/JP]; 〒6188589 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 深谷重一 (FUKATANI, Juichi) [JP/JP]; 〒5288585 滋賀県甲賀郡水口町泉1259 積
- (74)代理人: 安富康男 (YASUTOMI, Yasuo); 〒5320011 大阪府大阪市淀川区西中島5丁目4番20号 中央ビル Osaka (JP).
- (81)指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84)指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:  
— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイドスノート」を参照。

(54) Title: METHOD FOR RELEASING ADHERED ARTICLE

(54)発明の名称: 被着体の剥離方法

WO 2004/092292 A1

(57) Abstract: A method for releasing an article having been adhered by the use of an adhesive agent, characterized in that it comprises a step of enclosing the article together with a fluid being a gas at an ordinary temperature under an ordinary pressure in a pressure vessel, a step of keeping the inside of the pressure vessel in a high pressure state, and a step of reducing the pressure of the inside of the pressure vessel. The method allows the release of an article having been adhered by the use of an adhesive agent with ease and reliability, and can be used for recovering an electronic part from a laminate containing the part and for releasing a laminated glass.

(57)要約: 本発明は、接着剤を用いて接着された被着体を容易に、かつ、確実に剥離することができる被着体の剥離方法、電子部品積層体から電子部品を回収する方法、及び、合わせガラスの剥離方法を提供することを目的とする。本発明は、接着剤を用いて接着された被着体を剥離する方法であって、被着体と常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程と、前記耐圧容器内を高圧状態にする工程と、前記耐圧容器内を解圧する工程とを有することを特徴とする被着体の剥離方法である。

## 明細書

## 被着体の剥離方法

## 5 技術分野

本発明は、接着剤を用いて接着された被着体を容易に、かつ、確実に剥離することができる被着体の剥離方法、電子部品積層体から電子部品を回収する方法、及び、合わせガラスの剥離方法に関する。

## 10 背景技術

接着剤は、プラスチック、ガラス、金属、木材、陶器、ゴム、紙、布、皮等あらゆるもの接着に用いられており、接着剤により接着された被着体があらゆる分野に用いられている。近年、リサイクル等の観点から、いったん接着剤により接着された被着体を剥離して再利用することが求められている。しかし、接着剤の種類や被着体の性質、形状等によっては、被着体を剥離することは容易ではなかった。とりわけ、接着力が強固である場合や、脆弱な被着体を損傷することなく剥離したい場合には、極めて煩雑な操作が要求された。

例えば、ガラス板の間に接着剤や可塑化ポリビニルブチラール樹脂等の熱可塑性樹脂シートからなる合わせガラス用中間膜を挟み、互いに接着させて得られる合わせガラスは、ガラスに物体が衝突したとき等のガラスの飛散、ガラスによる人体、器具等への障害を防止するため又は防犯用として自動車、航空機等の車両用ガラスや、建築物等の窓ガラス等として広く使用されている。このような合わせガラスについても、リサイクル等の観点から使用済の合わせガラスを解体してガラスや合わせガラス用中間膜を再利用することが求められている。また、例えば自動車や航空機に用いられる被着体には極めて厳格な品質基準が設けられており、ガラスの貼り合わせ時に気泡の巻き込み等があったものは不良品とされる。特に面積の大きなフロントガラスの場合、このような気泡の巻き込みは起こりやすく、全世界の合わせガラスの利用量を考えれば、膨大な量の不良品が発生しているものと思われる。このような不良品からガラスや合わせガラス用中間膜等を

回収することは、コストの削減や資源の有効利用の観点から極めて重要な課題となっている。

これに対して、特開2001-104928号公報には、合わせガラスを小片に粉碎することにより、接着剤から剥がれ落ちたガラス片を再利用する方法が開示されている。<sup>5</sup>しかしながら、この方法では、大量のガラス片が付着した接着剤や合わせガラス用中間膜が残存し、これらを再生することについては何ら解決されていない。ガラス片が付着した接着剤や合わせガラス用中間膜は通常炉では焼却できず特殊な炉を用いて焼却処分するしかなかった。

特開平6-247751号公報には、合わせガラスを合わせガラス用中間膜が軟化する温度に加熱して内板と外板とを別々に分離して回収する方法が開示されている。<sup>10</sup>しかしながら、この方法でも、実際には、自動車用フロントガラス等のサイズの大きいものでは容易には分離することができず、回収したガラスの表面に接着剤が糊残りしたりすることがあるという問題があった。

特許第3137504号公報には、小片に粉碎した合わせガラスを水槽に入れ、<sup>15</sup>合わせガラス用中間膜を膨潤させながら特定の速度差で攪拌することにより中間膜に剪断力を付与することにより合わせガラスから合わせガラス用中間膜を剥離する方法が記載されている。しかしながら、この方法では、ガラス部分の再利用は可能であるものの、中間膜部分についてはガラス破碎片が完全に除去されないため、そのまま合わせガラス用中間膜として再利用するには品質上問題があり、<sup>20</sup>産業廃棄物として処分せざるを得なかった。

特開平6-219793号公報には、合わせガラスを-10°C以下に冷却することにより合わせガラス用中間膜とガラスとの接着力を低下させた後、この被着体に衝撃を与えてガラスを破碎すると同時に合わせガラス用中間膜を分離、回収する方法が開示されている。<sup>25</sup>しかしながら、この方法ではガラスと合わせガラス用中間膜との分離が不完全であり、そのままガラスや合わせガラス用中間膜として再利用するには品質上問題があり、産業廃棄物として処分せざるを得なかった。

特開2003-160688号公報や特開2003-285042号公報には、小片に粉碎した合わせガラスを有機溶剤に浸漬して合わせガラス用中間膜を溶解することにより、ガラスから合わせガラス用中間膜を除く方法が開示されている。

しかしながら、これらの方法では、有機溶剤から合わせガラス用中間膜成分を回収して再利用するのにコストがかかるうえ、大量の有機溶剤を使用することから、環境への負荷が大きいという問題があった。

また、近年では電子部品同士を積層した電子部品積層体からなる高い集積度を有する電子材料が汎用されている。このような電子部品間の接続にも接着剤が用いられている。しかし、電子部品積層体から電子部品を回収してリサイクルしようとしたり、製造工程の途中で不良が発生した場合に再構成しようとしたりしても、接着剤で接着された電子部品を取り外すことは極めて困難であった。例えば、特許文献3には、半導体素子搭載基板の半導体素子搭載部に予め半導体素子の外形より小さい穴を設け、該半導体素子搭載部の基板に接着剤を設け、該接着剤上に半導体素子を搭載し、該半導体素子を基板に接着した半導体装置が開示されている。これは、電子部品同士の接着部位を最小限に抑えることにより、接着強度を弱め回収を容易にしようとするものである。しかしながら、このような方法は穴開け位置に制約があり、コストもかさむうえ、得られる電子部品積層体の強度が弱くなってしまうという重大な欠点があった。結局、従来は電子部品積層体の全てを廃棄するしかなかった。

また、古紙回収により回収された接着剤を用いて製本された書籍類から、紙を回収して再利用する場合にも、紙と接着剤との剥離が問題となっている。特開平6-080945号公報には、高強度でパルパーで寸断されないことからフィルターで除去しやすい接着剤を使うことで、書籍類から接着剤を取り除く方法が開示されている。しかしながら、この方法では接着剤の種類が限定されるため、広範な書籍類の再生には適さないという問題があった。

更に、スチール缶を回収してこれを再利用することは極めて重要であるが、従来は、例えば特開平9-227957号公報に開示されているような、塗料樹脂を焼却する以外に手段がなく、しかもこの方法でも、完全に塗料樹脂を焼成することは困難であり炭化した塗料樹脂が残渣として残ってしまうという問題があった。

特開2002-343760号公報には、高圧雰囲気下で超臨界又は亜臨界状

態の水又は極性溶媒を圧散することにより、被洗浄物に付着又は溶着した有機高分子物質を物理的かつ化学的に除去する方法が記載されている。しかしながら、この方法では、例えば、二枚の被洗浄物間に薄く形成された有機高分子物質や、複雑な形状の被洗浄物に付着した有機高分子物質に対しては超臨界又は亜臨界状態の水又は極性溶媒を直接には圧散できないことから、応用可能な範囲が極めて限定されるという問題点があった。

#### 発明の要約

本発明は、接着剤を用いて接着された被着体を容易に、かつ、確実に剥離することができる被着体の剥離方法を提供することを目的とする。

本発明は、接着剤を用いて接着された被着体を剥離する方法であって、被着体と常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程と、上記耐圧容器内を高圧状態にする工程と、上記耐圧容器内を解圧する工程とを有する被着体の剥離方法である。

上記常温常圧で気体である流体は、空気、二酸化炭素、窒素、酸素、メタン、エタン、プロパン及びブタンからなる群より選択される少なくとも1種であることが好ましく、少なくとも二酸化炭素を含有することがより好ましい。

上記被着体と常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程において、更に、耐圧容器中に水を封入することが好ましく、更に、離型剤を封入することがより好ましい。

上記耐圧容器内を高圧状態にする工程において、耐圧容器内を0.5 MPa以上にすることが好ましく、5 MPa以上にすることがより好ましく、耐圧容器内に含まれる常温常圧で気体である流体の少なくとも1種を超臨界状態又は亜臨界状態にすることが更に好ましい。また、耐圧容器内を高圧状態にする工程において、耐圧容器内を、接着剤のガラス転移温度より20°C低い温度よりも高い温度にすることが好ましい。

上記耐圧容器内を解圧する工程において、急激に解圧することが好ましい。

接着剤により接着された電子部品積層体から電子部品を回収する方法であって、電子部品積層体と常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程と、

上記耐圧容器内を高圧状態にする工程と、上記耐圧容器内を解圧する工程とを有する電子部品積層体から電子部品を回収する方法もまた、本発明の1つである。

複数のガラスを接着剤又は合わせガラス用中間膜により接着してなる合わせガラスを、ガラスと接着剤又は合わせガラス用中間膜とに剥離する方法であって、

- 5 合わせガラスと常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程と、上記耐圧容器内を高圧状態にする工程と、上記耐圧容器内を解圧する工程とを有する合わせガラスの剥離方法もまた、本発明の1つである。

本発明の合わせガラスの剥離方法により回収した合わせガラス用中間膜を焼成する合わせガラスからインジウムドープ酸化スズ微粒子を回収する方法もまた、

- 10 本発明の1つである。

#### 発明の詳細な開示

以下に本発明を詳述する。

本発明の被着体の剥離方法は、接着剤を用いて接着された被着体を剥離する方法であって、被着体と常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程と、前記耐圧容器内を高圧状態にする工程と、前記耐圧容器内を解圧する工程とを有するものである。

本発明者らは、銳意検討の結果、被着体を常温常圧で気体である流体とともに高圧状態した後、解圧することにより、糊残り等をすることもなく完全に剥離できることを見出し、本発明を完成するに至った。

高圧状態にある流体、とりわけ超臨界状態又は亜臨界状態にある流体は、容易に被着体を接着する接着剤中に浸透することができる。このように接着剤中に流体が浸透した状態で解圧すれば、接着剤中の流体の体積が変化し、その体積変化に伴って被着体と接着剤との間に応力が生じ、この応力により剥離が行なわれるものと考えられる。

このように被着体と接着剤との接着力が低下する態様としては、例えば、上記接着剤が発泡して接着剤と被着体との接着面積を減少させる態様や、上記接着剤が発泡しないまでも膨潤して接着力を減少させる態様や、膨張した流体が接着界面に気体として放出され、該気体により接着面の少なくとも一部が剥離される態

様等が考えられるが、実際にはこれらの態様が複合的に起こるものと考えられる。

上記のいずれの態様により接着力の低下が起こるかは、主に解圧時における接着剤の弾性率により決まると考えられる。即ち、解圧時における接着剤の弾性率

が高い場合には、膨張した流体は接着剤を発泡させることができずに接着剤の外

5 に気体として放出され、接着面の少なくとも一部を剥離する。一方、解圧時における接着剤の弾性率が低い場合には、膨張した流体は接着剤を発泡又は膨潤させ、接着剤と被着体との接着面積を減少させる。ただし、接着剤の弾性率が低すぎる

場合には、ガス抜けが起こって発泡できなかったり、発泡したとしても接着界面に発生した応力がすぐに緩和してしまったりすることがある。接着剤の弾性率は

10 温度により大きく変化することから、解圧時の温度等の設定により主に上述のいずれの態様により接着力を低下させるかを決定することができると考えられる。

本発明の被着体の剥離方法に供する被着体としては、接着剤により接着されたものであれば特に限定されないが、複雑な形状を有するものや、脆弱なものである場合には、本発明の被着体の剥離方法が特に有効である。このような被着体と

15 しては、例えば、合わせガラス、電子部品積層体、封止剤で接着された液晶表示装置、各種の家電製品や建築材料等が挙げられる。また、上記電子部品積層体には、スタック型半導体や積層基板等が含まれ、回収される電子部品には、ウエハ

やチップ、基板等が含まれる。更に、従来は焼成する以外に方法のなかつた缶飲料の塗料や、パルプの再生に障害であった製本用接着剤等も剥離することができる。

20 上記被着体を接着する接着剤としは特に限定されないが、例えば、接着性を有しないベース樹脂と可塑剤とからなるもの、熱可塑性樹脂を接着成分とするもの、硬化性樹脂を接着成分とするもの、エラストマーを接着成分とするもの等が挙げられる。

上記接着剤が、接着性を有しないベース樹脂と接着性を付与する可塑剤とからなるものである場合において、上記ベース樹脂としては、ガラス転移温度が40°C以上の熱可塑性樹脂であって可塑剤を加えることによりガラス転移温度を40°C以下にすることができるものであれば特に限定されず、例えば、ポリビニルブチラール樹脂、ポリビニルアセタール樹脂、ポリウレタン系樹脂、エチレン-酢

25

酸ビニル系樹脂、エチレンーエチルアクリレート系樹脂、けん化度の高い高分子量ポリビニルアルコール、ポリ（メタ）アクリル酸エステル、ポリエステル系樹脂等が挙げられる。

上記可塑剤としては特に限定されないが、例えば、上記ベース樹脂がポリビニルブチラール樹脂、ポリビニルアセタール樹脂、ポリウレタン系樹脂、エチレンー酢酸ビニル系樹脂、エチレンーエチルアクリレート系樹脂である場合には、トリエチレングリコールージー2-エチルブチレート、トリエチレングリコールージー2-エチルヘキサノエート、トリエチレングリコールージー2-ヘプタノエート等が好適に用いられる。また、上記ベース樹脂がポリエステル樹脂である場合には、例えば、脂肪族水酸基含有化合物、芳香族水酸基含有化合物、脂肪族グリシジル基含有化合物、芳香族グリシジル基含有化合物等が好適に用いられる。これらのポリエステル樹脂に好適な可塑剤は、モノマー、オリゴマー、ポリマーのいずれの状態であってもよく、水酸基及びグリシジル基は分子骨格の末端、側鎖、分子骨格内のいずれの部位にあってもよい。また、水酸基及びグリシジル基の数は1分子あたり1個以上であることが好ましく、2個以上であることがより好ましい。

上記脂肪族水酸基含有化合物としては特に限定されず、例えば、ポリヒドロキシアルカン、アルキレングリコール、炭素数2～4のアルキレン基を有するポリオキシアルキレングリコール、ポリテトラメチレンエーテルグリコール等を含む長鎖ポリオール、水酸基末端ポリアルカジエン、ビスフェノールAのポリエチレングリコール付加物（炭素数1～30）、ビスフェノールAのポリエチレングリコール付加物（炭素数1～30）、上記ポリエステル樹脂以外の水酸基末端ポリエステル、水酸基末端ポリカプロラクトン、水酸基末端ポリカーボネート、アクリルポリオール、エチレンー酢酸ビニル共重合体の（部分）けん化物、ポリビニルアルコール、ひまし油、ケトン樹脂、キシレン樹脂、及び、これらの脂肪族又は芳香族水酸基含有化合物の共重合体や変成物等が挙げられる。これらは単独で用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

上記グリシジル基含有化合物としては、例えば、ビスフェノールA型エポキシ

樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビスフェノールAD型エポキシ樹脂、  
ビスフェノールS型エポキシ樹脂等のビスフェノール型エポキシ樹脂；フェノールノボラック型エポキシ樹脂；トリスフェノールメタントリグリシジルテーテル等の芳香族エポキシ樹脂及びこれらの水添加物又は臭素化物；3, 4-エポキシ  
5 シクロヘキシリメチル-3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、3, 4-エポキシー-2-メチルシクロヘキシリメチル-3, 4-エポキシー-2-メチルシクロヘキサンカルボキシレート、ビス(3, 4-エポキシシクロヘキシリ)アジペート、ビス(3, 4-エポキシシクロヘキシリメチル)アジペート、2-(3, 4-エポキシシクロヘキシリ-5, 5-スピロー-3, 4-エポキシ)シクロ  
10 ヘキサノン-メタジオキサン、ビス(2, 3-エポキシシクロペンチル)エーテル(ダイセル化学工業社製、商品名「EHPH-3150」)等の脂環族エポキシ樹脂；1, 4-ブタンジオールのジグリシジルエーテル、1, 6-ヘキサンジオールのジグリシジルエーテル、グリセリンのトリグリシジルエーテル、トリメチロールプロパンのトリグリシジルエーテル、ポリプロピレングリコールのジ  
15 グリシジルエーテル、炭素数2~9(好ましくは炭素数2~4)のアルキレン基を有するポリオキシアルキレングリコール、ポリテトラメチレンエーテルグリコール等を含むポリオールのポリグリシジルエーテル等の脂肪族エポキシ樹脂等が挙げられる。なお、上記エポキシのグリシジル基が炭素数1~30(好ましくは2~16)のポリエチレンオキサイドに置換された分子も可塑剤になり得る。更  
20 にフタル酸ジグリシジルエステル、テトラヒドロフタル酸ジグリシジルエステル、ヘキサヒドロフタル酸ジグリシジルエステル、ジグリシジル-p-オキシ安息香酸、サリチル酸のグリシジルエーテルーグリシジルエステル、ダイマー酸のグリシジルエステル等のグリシジルエステルエステル型エポキシ樹脂及びこれらの水添物；環状アルキレン尿素のN, N'-ジグリシジル誘導体、p-アミノフェノールのN, N, O-トリグリシジル誘導体、m-アミノフェノールのN, N, O-トリグリシジル誘導体等のグリシジルアミン型エポキシ樹脂及びこれらの水添物；グリシジル(メタ)アクリレートと、エチレン、酢酸ビニル、(メタ)アクリル酸エステル等のラジカル重合型モノマーとの共重体；エポキシ化ポリブタジ  
25

エン等の共役ジエン化合物を主体とする重合体又はその部分水添物の重合体の不飽和炭素の二重結合をエポキシ化したもの；エポキシ化SBS等の「ビニル芳香族化合物を主体とする重合体ブロック」と「共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロック又はその部分水添物の重合体ブロック」とを同一分子内にもつプロック共重合体の共役ジエン化合物の不飽和炭素の二重結合をエポキシ化したもの；1分子あたり1個以上を有するポリエステル樹脂；上記各種エポキシ基含有化合物の構造中にウレタン結合やポリカプロラクトン結合を導入したウレタン変成エポキシ樹脂やポリカプロラクトン変成エポキシ樹脂；上記各種エポキシ基含有化合物にNBR、CTBN、ポリブタジエン、アクリルゴム等のゴム成分を含有させたゴム変成エポキシ樹脂等の従来公知の各種エポキシ基含有化合物が挙げられる。

なお、このような接着性を有しないベース樹脂と可塑剤とからなる接着剤には、溶剤系の接着剤も含まれる。例えば、ポリビニルアルコール水溶液は、ベース樹脂であるポリビニルアルコールに可塑剤として水を加えたものであると考えることができる。

上記接着剤が熱可塑性樹脂を接着成分とするものである場合において、上記熱可塑性組成樹脂としては、ガラス転移温度が40°C以下であれば特に限定されず、例えば、該条件を満たすポリ酢酸ビニル、ポリビニルアルコール、ポリ塩化ビニル、ポリビニルブチラール等のビニル系樹脂；ポリ(メタ)アクリル酸、ポリ(メタ)アクリル酸エステル等のアクリル系樹脂；ポリエステル系樹脂、ニトロセルロース、でんぶん等が挙げられる。

上記接着剤が硬化性樹脂を接着成分とするものである場合において、上記硬化性樹脂としては特に限定されず、例えば、フェノール樹脂、レゾルシン樹脂、フラン樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂、ポリエステル樹脂、ポリウレタン樹脂、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂等が挙げられる。

上記接着剤がエラストマーを接着成分とするものである場合において、上記エラストマーとしては特に限定されず、天然ゴムの他、ブタジエンアクリロニトリルゴム、スチレン-イソプレン-スチレン系樹脂、スチレン-エチレン-ブタジエン-スチレン系樹脂、エチレン-プロピレンゴム、スチレン-ブタジエン-ス

チレン系樹脂等の合成ゴムが挙げられる。これらのゴムは水素添加されていてもよい。また、これらのゴムは可塑剤を配合して可とう性が付与されたものであってもよい。

本発明の被着体の剥離方法は、被着体と常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程を有する。

上記常温常圧で気体である流体としては特に限定されないが、空気、二酸化炭素、窒素、酸素、メタン、エタン、プロパン及びブタンからなる群より選択される少なくとも1種であることが好ましい。なかでも、二酸化炭素は臨界点が比較的常温に近い条件にあることから、高密度の状態で被着体を処理することが可能となり、例えば、水や離型剤等を併用したときにこれらを接着剤中に浸透させる能力に優れ、極めて高い剥離効率を実現できる。また、二酸化炭素は、無臭で毒性も少なく不燃性であることから、安全性の面でも利用価値が高い。また、二酸化炭素以外の流体と併用する場合にも、これらの優れた性質を発揮することができる。

上記常温常圧で気体である流体を封入する方法としては特に限定されず、上記耐圧容器内に気体、液体又は固体のいずれの状態で封入してもよい。例えば、上記常温常圧で気体である流体として二酸化炭素を用いる場合には、気体状態又は液体状態の二酸化炭素を吹き込んでもよく、ドライアイス状態の二酸化炭素を入れてもよい。

上記常温常圧で気体である流体の封入量としては、用いる圧力容器の容量に合わせて適当な量を選択すればよく特に限定されないが、少なくとも上記圧力容器を一定の温度に昇温したときに圧力容器内の圧力を0.5 MPa以上にできる程度の量を封入することが好ましい。

上記被着体と常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程においては、更に、耐圧容器中に水を封入することが好ましい。水を併用することにより、より容易かつ確実に被着体を剥離することができる。上記水としては特に限定されず、通常の水道水、蒸留水等を用いることができる。

上記水の封入量としては特に限定されないが、圧力容器の容積に対する好ましい下限は0.01 g/mL、好ましい上限は0.2 g/mLである。0.01 g

／mL未満であると、充分な被着体の剥離効果が得られないことがある。0.2g/mLを超えると、水を圧力容器内に均質相として存在させることが困難で、凝縮相と非凝縮相とに相分離する。この場合、相分離した凝縮相中に被着体が浸漬すると剥離効率が劣ることがあるから、何らかの手段により被着体が凝縮相中に浸漬しないようにするか、水相を均質層として存在させる必要がある。

上記被着体と常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程においては、更に、耐圧容器中に離型剤を封入することが好ましい。通常、接着剤の内部に離型剤を浸透させることは困難であるが、本発明の被着体の剥離方法では、高圧状態の流体中で処理を行うことから、流体中に溶媒和された離型剤が接着剤の内部に浸透することができ、極めて高い剥離効果を発揮できる。

上記離型剤としては特に限定されないが、例えば、界面活性剤、各種イオンを発生する有機塩、各種イオンを発生する無機塩、キレート化合物、低分子量有機化合物等が挙げられる。

上記界面活性剤としては特に限定されず、脂肪酸（塩）、 $\alpha$ -スルホ脂肪酸エステル（塩）、アルキルベンゼンズルホン酸（塩）、アルキルエーテル硫酸エステル（塩）、アルキル硫酸トリエタノールアミン等の陰イオン系；アルキルトリメチルアンモニウム（塩）、ジアルキルジメチルアンモニウムクロリド、アルキルピリミジニウムクロリド等の陽イオン系；アルキルカルボキシベタイン等の両イオン系；脂肪酸ジエタノールアミド、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル等の非イオン系のいずれも用いることができる。

上記各種イオンを発生する有機塩又は無機酸として特に限定されず、例えば、カリウム、ナトリウム、マグネシウム等のアルカリ金属及びアルカリ土類金属と、オクチル酸、ヘキシル酸、酪酸、酢酸、蟻酸等のカルボン酸等の有機酸、又は、リン酸、硫酸、硝酸、塩酸等と無機酸との塩等が挙げられる。上記アルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩としては、炭素数5～16の有機酸のアルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩が好ましく、炭素数6～10のカルボン酸又はジカルボン酸のマグネシウム塩がより好ましい。上記カルボン酸又はジカルボン酸のマグネシウム塩としては特に限定されず、例えば、2-エチル酪酸マグネシウム、吉

草酸マグネシウム、ヘキサン酸マグネシウム、ヘプタン酸マグネシウム、オクタノン酸マグネシウム、ノナン酸マグネシウム、デカン酸マグネシウム、グルタル酸マグネシウム、アジピン酸マグネシウム等が挙げられる。

上記キレート化合物としては特に限定されず、例えば、エチレンジアミン四酢酸（塩）、ニトリロ三酢酸（塩）、ヒドロキシリイミノ二酢酸（塩）等のカルボン酸（塩）；水素基含有化合物；ヒドロキシエチリデンニリン酸等のホスホン酸系等、 $\beta$ -ジケトン類等が挙げられる。なかでも、 $\beta$ -ジケトン類は、被着体用中間剤に用いられる可塑剤や樹脂との相溶性に優れることから好適である。上記 $\beta$ -ジケトン類としては、例えば、アセチルアセトン、ベンゾイルトリフルオロアセトン、ジピバロイルメタン等が好適である。

上記低分子量有機化合物としては特に限定されず、例えば、フッ素含有化合物；シリコーンオイル等のケイ素含有化合物；アルコール等が挙げられる。ただし、アルコールを用いる場合には、大量に用いるとアルコールによる上記接着剤の溶解が起こり、かえって剥離効率を悪化する場合があるので注意を要する。

また、上記接着剤の接着成分が水酸基、エステル基、アミノ基、カルボニル基等の親水基を有する場合には、水も有効な離型剤として作用し得る。

これらの離型剤は単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

上記耐圧容器としては、充分な耐圧性を有するものであれば特に限定されず、例えば、金属等からなるもの、オートクレーブ、ゴムバック等を用いることができる。また、複数の容器等に分封した被着体をオートクレーブに入れて一括処理することも可能である。

本発明の被着体の剥離方法は、耐圧容器内を高圧状態にする工程を有する。このときの圧力としては、接着剤や合わせガラス用中間膜の種類等により適宜選択されるが、より高圧になるほど短時間で剥離が完了することができることから好ましい。好ましい下限は0.5 MPaである。0.5 MPa未満であると、接着剤への流体、水及び離型剤の浸透に時間がかかり効率が悪かったり、充分な量の流体を接着剤に浸透させることができずに剥離できなかったりすることがある。より好ましい下限は5 MPaである。5 MPa以上の圧力をかけた場合には、広範な被着体について短時間で剥離を完了することができる。

また、このときの温度としては、接着剤のガラス転移温度より 20 °C 低い温度よりも高い温度にすることが好ましい。これより低い温度であると、流体の接着剤への浸透に時間がかかることがある。より好ましくは接着剤を構成する樹脂のガラス転移温度より 10 °C 低い温度よりも高いことである。温度の上限としては接着剤の種類に合わせて最適の温度を設定すればよく特に限定されないが、高温になると流体の密度が下がったり、被着体と接着剤との親和性が高くなったりして、流体の接着剤への浸透性が低下して剥離効率が低下することがある。一般的な接着剤の場合、好ましい上限は 150 °C、より好ましい下限は 100 °C である。ただし、接着剤が架橋性の場合又は結晶性の場合にはこの限りではない。

上記耐圧容器内を高圧状態にする工程においては、耐圧容器内に含まれる常温常圧で気体である流体の少なくとも 1 種を超臨界状態又は亜臨界状態にすることが好ましい。超臨界状態又は亜臨界状態の流体は、接着剤への浸透性に極めて優れ、高い剥離効果を発現することができる。

なお、本明細書において、超臨界状態とは、臨界圧力（以下、 $P_c$  ともいう）以上、かつ臨界温度（以下、 $T_c$  ともいう）以上の条件にある状態を意味する。また、亜臨界状態とは、超臨界状態以外の状態であって、反応時の圧力、温度をそれぞれ  $P$ 、 $T$  としたときに、 $0.5 < P/P_c < 1.0$  かつ  $0.5 < T/T_c < 1.0$  の条件にある状態を意味する。上記亜臨界状態の好ましい圧力、温度の範囲は、 $0.6 < P/P_c < 1.0$  かつ  $0.6 < T/T_c < 1.0$  である。なお、ここで温度は摂氏を表すが、 $T_c$  又は  $T$  のいずれかが摂氏ではマイナスである場合には、温度に関しては亜臨界状態を満たしているものとして扱い、圧力が  $0.5 < P/P_c$  の条件を満たすときには亜臨界状態にあるものとする。

上記耐圧容器内を高圧状態にする方法としては特に限定されないが、例えば、上記被着体と常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程において、気体状の流体を封入する際に一定以上の圧力になるまで流体を吹き込む方法；流体等を封入した後に更に加熱する方法等が挙げられる。

本発明の被着体の剥離方法においては、上記耐圧容器内を高圧にした状態で、

耐圧容器を振動させたり超音波照射したりする等の物理的な力を加えてもよい。物理的な力を加えることにより、被着体の剥離をより一層促進することができる。

本発明の被着体の剥離方法は、上記耐圧容器内を解圧する工程を有する。ここで解圧とは、高圧状態にある容器内の圧力を低下させることを意味する。後工程 5 を考えると、上記解圧は最終的には常圧にまで行うことが好ましい。上記解圧は、上記容器を冷却して徐々に解圧してもよいし、急激に解圧してもよい。急激に解圧する場合には、接着剤に含浸した流体の体積が急激に膨張して接着界面に高い応力が発生することから、より接着力を低下させることができる。急激に解圧する方法としては特に限定されず、例えば、上記容器に接続されたバルブを開放す 10 る方法等が挙げられる。

上記耐圧容器内を解圧する工程は、接着剤のガラス転移温度より 10 °C 高い温度よりも低い温度にて行うことが好ましい。これ以上の温度で解圧を行った場合、接着剤の弾性率が低くガス抜け等が発生して剥離効率が低下することがある。ただし、接着剤に架橋が施されている場合又は結晶性の場合にはこの限りではない。 15 温度の下限については特に限定されないが、接着剤のガラス転移温度より 25 °C 低い温度よりも高い温度にて行うことが好ましい。これ以下の温度で解圧を行った場合、接着剤の弾性率が高すぎて、充分な剥離圧力が得られず剥離効率が低下することがある。

本発明の被着体の剥離方法においては、流体の種類、加圧時の温度や圧力、耐 20 圧容器内を高圧状態に保つ時間、解圧の方法等を選択することにより、種々の様により被着体の剥離を行うことができる。これらの条件は、被着体の種類、接着剤の種類、剥離の目的等により適宜選択される。

例えば、接着剤が接着性を有しないベース樹脂と接着性を付与する可塑剤である場合には、流体として二酸化炭素を選択して比較的低温度で長時間処理を行う 25 ことにより、ベース樹脂を分解することなく低分子量物質である可塑剤を流体に溶解して接着剤の接着性を失わしめ、被着体を剥離できると同時に、ベース樹脂をも回収しリサイクルすることができる。

また、例えば、耐熱性が高い被着体を回収する場合にあっては、水を併用して

高温高圧で処理することにより、接着剤の少なくとも 1 成分を分解し、分解した低分子量物質を流体に溶解して接着剤の接着性を失わしめ、被着体を剥離できる。

また、分解促進剤として、例えば、過酸化水素水、過酢酸等のペルオキシ酸；過硫酸アンモニウム、過硫酸ナトリウム、過硫酸カリウム等の過硫酸塩類；炭酸ナ

5 トリウムの過酸化水素付加化合物等の過炭酸ナトリウム（塩）；過酸化ジイソプロピル等のペルオキシ基を有する過酸化物等を併用してもよい。更に、各種の酸触媒又はアルカリ触媒を用いてもよい。この方法は、被着体に物理的な衝撃がかからないことから、被着体が脆弱である場合にも適している。

更に、例えば、接着剤が分解しにくいものである場合には、流体を接着剤中に

10 含浸させ、急激に解圧することにより接着剤を発泡させて接着剤の接着性を失わしめ、被着体を剥離できる。

なお、加圧のプロセスと解圧のプロセスとは、必要に応じて複数回繰り返して行ってもよい。

本発明の被着体の剥離方法によれば、接着剤を用いて接着された被着体であれ

15 ば、複雑な形状を有するものや脆弱なものであっても容易に、かつ、確実に剥離することができる。また、本発明の被着体の剥離方法では、有機溶剤をほとんど利用しないことから、接着剤に含有されていた可塑剤等が溶剤中に溶出するおそれもなく、また、環境に与える負荷も極めて小さい。

本発明の被着体の剥離方法によれば、例えば、合わせガラス、電子部品積層体、

20 封止剤で接着された液晶表示装置、各種の家電製品や建築材料等を剥離して回収し、リサイクルに供することができる。なかでも、電子部品積層体、合わせガラス等では、リサイクルに対する社会的な需要も極めて大きい。

接着剤により接着された電子部品積層体から電子部品を回収する方法であって、電子部品積層体と常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程と、  
25 耐圧容器内を高圧状態にする工程と、耐圧容器内を解圧する工程とを有する電子部品積層体から電子部品を回収する方法もまた本発明の 1 つである。

複数のガラスを接着剤又は合わせガラス用中間膜により接着してなる合わせガラスを、ガラスと接着剤又は合わせガラス用中間膜とに剥離する方法であって、合わせガラスと常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程と、耐

圧容器内を高圧状態にする工程と、耐圧容器内を解圧する工程とを有する合わせガラスの剥離方法もまた、本発明の1つである。

本発明の合わせガラスの剥離方法に供する合わせガラスとしては、車両用ガラス等として用いられる大判の1枚ものであってもよく、切断機等を用いて小片に5 切断したもの、粉碎機等を用いて小片に粉碎したものであってもよい。また、合わせガラスのガラス部分を粉碎してガラスを回収した後に残される、多数のガラス片が付着した合わせガラス用中間膜や、ガラスの表面に合わせガラス用中間膜に達する程度の亀裂を生じさせたものを供してもよい。1枚ものを用いた場合には、回収したガラスや中間膜等をそのまま再利用することができる。また、小片10 やガラス片が付着した合わせガラス用中間膜を用いる場合には、比較的容量の小さい圧力容器を用いることができ、また、一度に大量の合わせガラスを短時間で効率よく処理することができる。

また、合わせガラスとして分断又は破碎した小片を供した場合には、本発明の合わせガラスの剥離方法により剥離を行った後に、得られたガラスと接着剤又は15 合わせガラス用中間膜との混合物を、例えば、水中に浸漬することを行ってもよい。ガラスと接着剤又は合わせガラス用中間膜とは比重が大きく異なることから、ガラスは水の底に沈殿し、一方、樹脂を主成分とする接着剤又は合わせガラス用中間膜は浮遊する。従って、浮遊する樹脂成分を捕集する等の方法により極めて容易に分離することができる。

20 本発明の合わせガラスの剥離方法によれば、容易かつ確実に、合わせガラスをガラスと接着剤又は合わせガラス用中間膜とに剥離することができる。得られたガラスや合わせガラス用中間膜等は、互いに完全に分離していることから、そのままリサイクル等により再利用することができる。とりわけ、1枚ものの被着体を用いた場合には、回収したガラスや合わせガラス用中間膜をそのまま再利用す25 ることもできる。

また、遮熱中間膜のような金属微粒子を含む合わせガラス用中間膜の場合でも、金属微粒子をガラスとは別に回収でき回収時に混入することがない。金属微粒子のなかでも、インジウムドープ酸化スズ微粒子等は高価であることから、これを回収してリサイクルすることは、経済的にも極めて重要である。インジウムドー

酸化スズ微粒子を回収する方法としては特に限定されないが、本発明の合わせガラスの剥離方法により回収した合わせガラス用中間膜を焼成する方法等が好ましい。焼成後の残渣には、ガラスに由来する成分が全く混入しないことから、極めて純度の高いインジウムドープ酸化スズ微粒子を回収することができる。

- 5 このような本発明の合わせガラスの剥離方法により回収した合わせガラス用中間膜を焼成する合わせガラスからインジウムドープ酸化スズ微粒子を回収する方法もまた、本発明の1つである。

#### 発明を実施するための最良の形態

- 10 以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

##### (実施例1)

###### (1) 合わせガラスの作製

- 15 ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度1700、残存アセチル基1mo1%、ブチラール化度69mo1%）100重量部に対し、可塑剤としてトリエチレングリコールージー2-エチルヘサノエート（3GO）41重量部を添加混合し、押出機により溶融混練りし、押出金型よりシート状に押出して、厚さ0.76mmのポリビニルブチラール樹脂シート（PVBシート）を得た。

- 20 次いで、一対のエンボスロールを用いて、得られたPVBシートの両面に微細な山形の凹凸からなる多数のエンボスを付与し、両面にエンボス模様が形成された合わせガラス用中間膜を製造した。得られた合わせガラス用中間膜を温度20～25°C、湿度25～30%RHの雰囲気下に2時間放置して調湿した。

- 25 次いで、得られた合わせガラス用中間膜を、二枚の透明な無機平板ガラス（10cm角、厚さ1mm）の間に挟んで合わせガラス構成体（積層体）とし、これをゴムバックに入れ、それを更に厚さ5mmのステンレス製プレス用鋼板で挟み、ゴムバック内の圧力を16kPaまで減圧し、温度130°C条件で脱気、真空プレスを行って合わせガラスを作製した。

###### (2) 被着体の剥離

1 L容の耐圧容器に、得られた合わせガラスと蒸留水40gを入れた後、常温にて耐圧容器に二酸化炭素を耐圧容器内の圧力が25MPaとなるまで注入した。この耐圧容器を60°Cにまで昇温し、耐圧容器内の圧力が安定して25MPaになるように二酸化炭素の放出・昇圧を繰り返した。耐圧容器内の圧力が25MPaに安定してから24時間保持した。

その後、耐圧容器を室温にまで冷却した後、解圧した。得られたものの状態を目視にて観察したところ、完全にガラスと合わせガラス用中間膜とに分離していた。

10 (実施例2)

実施例1で作製した合わせガラスを、粉碎機を用いて小片に粉碎した。

1 L容の耐圧容器に、得られた合わせガラスの粉碎小片と蒸留水40gを入れた後、常温にて耐圧容器に二酸化炭素を耐圧容器内の圧力が15MPaとなるまで注入した。この耐圧容器を60°Cにまで昇温し、耐圧容器内の圧力が安定して15MPaになるように二酸化炭素の放出・昇圧を繰り返した。耐圧容器内の圧力が15MPaに安定してから3時間保持した。

その後、耐圧容器を室温にまで冷却した後、解圧した。得られたものの状態を目視にて観察したところ、完全にガラスと合わせガラス用中間膜とに分離していた。

20

(実施例3)

実施例1で作製した合わせガラスを、高速回転カッターを用いて1cm角の小片に分断した。

1 L容の耐圧容器に、得られた合わせガラスの分断小片と蒸留水40gを入れた後、常温にて耐圧容器に二酸化炭素を耐圧容器内の圧力が20MPaとなるまで注入した。この耐圧容器を常温で6時間保持した。

その後、耐圧容器を解圧した。得られたものの状態を目視にて観察したところ、完全にガラスと合わせガラス用中間膜とに分離していた。

## (実施例 4)

実施例 1 で作製した合わせガラスを、ハンマーを用いて粉碎し、ガラス面に約 2 cm 間隔に亀裂を生じさせた。

1 L 容の耐圧容器に、得られた亀裂の入った合わせガラスと蒸留水 40 g を入れた後、常温にて耐圧容器に二酸化炭素を耐圧容器内の圧力が 12 MPa となるまで注入した。この耐圧容器を 60 °C にまで昇温し、耐圧容器内の圧力が安定して 15 MPa になるように二酸化炭素の放出・昇圧を繰り返した。耐圧容器内の圧力が 15 MPa に安定してから 3 時間保持した。

その後、耐圧容器を室温にまで冷却した後、解圧した。得られたものの状態を 10 目視にて観察したところ、完全にガラスと合わせガラス用中間膜とに分離していた。

## (実施例 5)

1 L 容の耐圧容器に、実施例 1 で得られた合わせガラス、蒸留水 40 g 及び離 15 型剤としてアセチルアセトン 40 mL を入れた後、常温にて耐圧容器に二酸化炭素を耐圧容器内の圧力が 25 MPa となるまで注入した。この耐圧容器を 60 °C にまで昇温し、耐圧容器内の圧力が安定して 25 MPa になるように二酸化炭素の放出・昇圧を繰り返した。耐圧容器内の圧力が 25 MPa に安定してから 24 時間保持した。

20 その後、耐圧容器を室温にまで冷却した後、解圧した。得られたものの状態を目視にて観察したところ、完全にガラスと合わせガラス用中間膜とに分離していた。

## (実施例 6)

25 実施例 1 で作製した合わせガラスを、粉碎機を用いて小片に粉碎した。

1 L 容の耐圧容器に、得られた合わせガラスの粉碎小片と蒸留水 40 g 及び離型剤としてアセチルアセトン 40 mL を入れた後、常温にて耐圧容器に二酸化炭素を耐圧容器内の圧力が 15 MPa となるまで注入した。この耐圧容器を 60 °C にまで昇温し、耐圧容器内の圧力が安定して 15 MPa になるように二酸化炭素

の放出・昇圧を繰り返した。耐圧容器内の圧力が 1 5 M P a に安定してから 3 時間保持した。

その後、耐圧容器を室温にまで冷却した後、解圧した。得られたものの状態を目視にて観察したところ、完全にガラスと合わせガラス用中間膜とに分離してい  
5 た。

#### (実施例 7)

1 L 容の耐圧容器に、実施例 1 で得られた合わせガラス、蒸留水 4 0 g 及び離型剤としてメタノールとブタノールとの体積比 1 : 1 の混合溶剤 4 0 m L を入れ  
10 た後、常温にて耐圧容器に二酸化炭素を耐圧容器内の圧力が 2 5 M P a となるまで注入した。この耐圧容器を 6 0 °C にまで昇温し、耐圧容器内の圧力が安定して 2 5 M P a になるように二酸化炭素の放出・昇圧を繰り返した。耐圧容器内の圧力が 2 5 M P a に安定してから 2 4 時間保持した。

その後、耐圧容器を室温にまで冷却した後、解圧した。得られたものの状態を  
15 目視にて観察したところ、完全にガラスと合わせガラス用中間膜とに分離してい  
た。

#### (実施例 8)

実施例 1 で作製した合わせガラスを、粉碎機を用いて小片に粉碎した。

20 1 L 容の耐圧容器に、得られた合わせガラスの粉碎小片と蒸留水 4 0 g 及び離型剤としてメタノールとブタノールとの体積比 1 : 1 の混合溶剤 4 0 m L を入れた後、常温にて耐圧容器に二酸化炭素を耐圧容器内の圧力が 1 5 M P a となるまで注入した。この耐圧容器を 6 0 °C にまで昇温し、耐圧容器内の圧力が安定して 1 5 M P a になるように二酸化炭素の放出・昇圧を繰り返した。耐圧容器内の圧力が 1 5 M P a に安定してから 3 時間保持した。

その後、耐圧容器を室温にまで冷却した後、解圧した。得られたものの状態を  
目視にて観察したところ、完全にガラスと合わせガラス用中間膜とに分離してい  
た。

## (実施例 9)

1 L 容の耐圧容器に、実施例 1 で得られた合わせガラス、蒸留水 40 g 及び離型剤として酢酸マグネシウム 4 g を入れた後、常温にて耐圧容器に二酸化炭素を耐圧容器内の圧力が 12 MPa となるまで注入した。この耐圧容器を 60 °C にまで昇温し、耐圧容器内の圧力が安定して 15 MPa になるように二酸化炭素の放出・昇圧を繰り返した。耐圧容器内の圧力が 15 MPa に安定してから 3 時間保持した。

その後、耐圧容器を室温にまで冷却した後、解圧した。得られたものの状態を目視にて観察したところ、完全にガラスと合わせガラス用中間膜とに分離していた。

## (実施例 10)

実施例 1 で作製した合わせガラスを、粉碎機を用いて小片に粉碎した。

1 L 容の耐圧容器に、得られた合わせガラスの粉碎小片と蒸留水 40 g 及び離型剤として酢酸マグネシウム 4 g を入れた後、常温にて耐圧容器に二酸化炭素を耐圧容器内の圧力が 12 MPa となるまで注入した。この耐圧容器を 60 °C にまで昇温し、耐圧容器内の圧力が安定して 15 MPa になるように二酸化炭素の放出・昇圧を繰り返した。耐圧容器内の圧力が 15 MPa に安定してから 3 時間保持した。

その後、耐圧容器を室温にまで冷却した後、解圧した。得られたものの状態を目視にて観察したところ、完全にガラスと合わせガラス用中間膜とに分離していた。

## (実施例 11)

## 25 (1) 被着体の作製

ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 1700、残存アセチル基 1 mol %、ブチラール化度 69 mol %）100 重量部に対し、可塑剤としてトリエチレングリコール - ジ - 2 - エチルヘキサノエート (3GO) 41 重量部及びインジウムドープ酸化スズ微粒子 1 重量部を添加混合し、押出機により溶融混練りし、押出

金型よりシート状に押出して、厚さ0.76mmのポリビニルブチラール樹脂シート（PVBシート）を得た。

次いで、一对のエンボスロールを用いて、得られたPVBシートの両面に微細な山形の凹凸からなる多数のエンボスを付与し、両面にエンボス模様が形成された合わせガラス用中間膜を製造した。得られた合わせガラス用中間膜を温度20～25°C、湿度25～30%RHの雰囲気下に2時間放置して調湿した。

次いで、得られた合わせガラス用中間膜を、二枚の透明な無機平板ガラス（10cm角、厚さ1mm）の間に挟んで合わせガラス構成体（積層体）とし、これをゴムバックに入れ、それを更に厚さ5mmのステンレス製プレス用鋼板で挟み、ゴムバック内の圧力を16kPaまで減圧し、温度130°C条件で脱気、真空プレスを行って合わせガラスを作製した。

得られた合わせガラスを、高速回転カッターを用いて1cm角の小片に分断した。

## （2）被着体の剥離

1L容の耐圧容器に、得られた合わせガラス分断小片と蒸留水40gを入れた後、常温にて耐圧容器に二酸化炭素を耐圧容器内の圧力が20MPaとなるまで注入した。この耐圧容器を60°Cにまで昇温し、耐圧容器内の圧力が安定して20MPaになるように二酸化炭素の放出・昇圧を繰り返した。耐圧容器内の圧力が20MPaに安定してから6時間保持した。

その後、耐圧容器を室温にまで冷却した後、解圧した。得られたものの状態を目視にて観察したところ、完全にガラスと合わせガラス用中間膜とに分離していた。更に、分離した合わせガラス用中間膜を回収し、電気炉に入れ700°Cで焼成したところ、残渣として極めて純度の高いインジウムドープ酸化スズ微粒子を回収できた。

25

## 産業上の利用可能性

本発明によれば、接着剤を用いて接着された被着体を容易に、かつ、確実に剥離することができる被着体の剥離方法、電子部品積層体から電子部品を回収する方法、及び、合わせガラスの剥離方法を提供することができる。

## 請求の範囲

1. 接着剤を用いて接着された被着体を剥離する方法であって、被着体と常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程と、前記耐圧容器内を高圧状態にする工程と、前記耐圧容器内を解圧する工程とを有することを特徴とする被着体の剥離方法。  
5
2. 常温常圧で気体である流体は、空気、二酸化炭素、窒素、酸素、メタン、エタン、プロパン及びブタンからなる群より選択される少なくとも1種であること  
10 を特徴とする請求の範囲第1項記載の被着体の剥離方法。
3. 常温常圧で気体である流体は、少なくとも二酸化炭素を含有することを特徴とする請求の範囲第1又は2項記載の被着体の剥離方法。  
15
4. 被着体と常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程において、更に、耐圧容器中に水を封入することを特徴とする請求の範囲第1、2又は3項記載の被着体の剥離方法。  
20
5. 被着体と常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程において、更に、離型剤を封入することを特徴とする請求の範囲第1、2、3又は4項記載の被着体の剥離方法。  
25
6. 耐圧容器内を高圧状態にする工程において、耐圧容器内を0.5 MPa以上にすることを特徴とする請求の範囲第1、2、3、4又は5項記載の被着体の剥離方法。  
7. 耐圧容器内を高圧状態にする工程において、耐圧容器内を5 MPa以上にすることを特徴とする請求の範囲第1、2、3、4、5又は6項記載の被着体の剥離方法。

8. 耐圧容器内を高圧状態にする工程において、耐圧容器内に含まれる常温常圧で気体である流体の少なくとも1種を超臨界状態又は亜臨界状態にすることを特徴とする請求の範囲第1、2、3、4、5、6又は7項記載の被着体の剥離方法。

5

9. 耐圧容器内を高圧状態にする工程において、耐圧容器内を、接着剤を構成する樹脂のガラス転移温度より20°C低い温度よりも高い温度にすることを特徴とする請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7又は8項記載の被着体の剥離方法。

10 10. 耐圧容器内を解圧する工程において、急激に解圧することを特徴とする請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8又は9項記載の被着体の剥離方法。

11 11. 接着剤により接着された電子部品積層体から電子部品を回収する方法であって、電子部品積層体と常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程と、前記耐圧容器内を高圧状態にする工程と、前記耐圧容器内を解圧する工程とを有することを特徴とする電子部品積層体から電子部品を回収する方法。

12 12. 複数のガラスを接着剤又は合わせガラス用中間膜により接着してなる合わせガラスを、ガラスと接着剤又は合わせガラス用中間膜とに剥離する方法であつて、合わせガラスと常温常圧で気体である流体とを耐圧容器中に封入する工程と、前記耐圧容器内を高圧状態にする工程と、前記耐圧容器内を解圧する工程とを有することを特徴とする合わせガラスの剥離方法。

13 13. 請求の範囲第12項記載の合わせガラスの剥離方法により回収した合わせガラス用中間膜を焼成することを特徴とする合わせガラスからインジウムドープ酸化スズ微粒子を回収する方法。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/005291

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C09J5/00, B09B5/00, B09B3/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C09J5/00, B09B5/00, B09B3/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2002-155162 A (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd.), 28 May, 2002 (28.05.02), Claims; Par. No. [0014] (Family: none)	1-13
A	JP 10-237215 A (Toshiba Corp.), 08 September, 1998 (08.09.98), Claims (Family: none)	1-12 13
X	JP 2001-235718 A (Mitsuo KAMIWANO), 31 August, 2001 (31.08.01), Claims; Par. No. [0013] (Family: none)	1-13

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	
"A"	document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E"	earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L"	document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O"	document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P"	document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T"	later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&"	document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
29 June, 2004 (29.06.04)Date of mailing of the international search report  
13 July, 2004 (13.07.04)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/005291

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2002-177922 A (Ibiden Co., Ltd.), 25 June, 2002 (25.06.02), Claims (Family: none)	1-13

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2004/005291

**Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1.  Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2.  Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3.  Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

Claims 1 to 10 are inventions relating to a method for releasing an article having been adhered, and claims 11 to 13 are inventions relating to a method for recovering a specific article. Both groups of inventions are quite different from each other in the technical field, and therefore do not have the same or corresponding technical feature. In particular, the invention of claim 13 comprises a specific technical means of "firing", which has no association with the inventions of other claims, and thus it is clear that claim 13 does not have the same or corresponding technical feature as those of the other claims.

1.  As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2.  As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3.  As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4.  No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

**Remark on Protest**

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
 No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
Int. C1' C09J 5/00, B09B 5/00, B09B 3/00

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))  
Int. C1' C09J 5/00, B09B 5/00, B09B 3/00

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2004年
日本国登録実用新案公報	1994-2004年
日本国実用新案登録公報	1996-2004年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2002-155162 A (出光石油化学株式会社) 2002.05.28, 特許請求の範囲, 【0014】 (ファミリーなし)	1-13
X A	JP 10-237215 A (株式会社東芝) 1998.09.08, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-12 13
X	JP 2001-235718 A (上和野満雄) 2001.08.31, 特許請求の範囲, 【0013】	1-13

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献  
 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」同一パテントファミリー文献

## 国際調査を完了した日

29.06.2004

## 国際調査報告の発送日

13.7.2004

## 国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

橋本 栄和

4V 8620

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	(ファミリーなし)  JP 2002-177922 A (イビデン株式会社) 200 2. 06. 25, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-13

## 第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1.  請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2.  請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3.  請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1-10は、被着体の剥離方法に係る発明であり、請求の範囲11-13は特定物品の回収方法に係る発明であるものと認められるから、その技術分野を全く異なるものと認められ、特別な技術的特徴を一にするものとは認められない。特に、請求の範囲13の発明では、「焼成」なる他と関連を有しない特徴的な技術手段を必須とするものであり、特別な技術的特徴を一にするものとは明らかに認められない。

1.  出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2.  追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3.  出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4.  出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。